

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Takatoshi NISHIZAWA, et al.

GAU:

SERIAL NO: New Application

EXAMINER:

FILED: Herewith

FOR: LABEL FOR IN-MOLD FORMING

REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

- ☒ Full benefit of the filing date of International Application No. PCT/JP02/01146, filed February 12, 2002, is claimed pursuant to the provisions of **35 U.S.C. §120**.
- ☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of **35 U.S.C. §119(e)**:
- | <u>Application No.</u> | <u>Date Filed</u> |
|--|-------------------|
| <input checked="" type="checkbox"/> Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119 , as noted below. | |

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
Japan	2001-046324	February 22, 2001

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s)
- ☐ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.

Norman F. Oblon 27,013

Norman F. Oblon

Registration No. 24,618



22850

Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 05/03)

Thomas A. Blinka, Ph.D.
Registration No. 44,541

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 1 年 2 月 2 2 日
Date of Application:

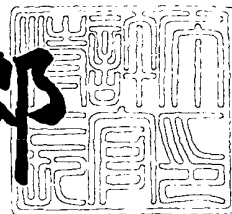
出 願 番 号 特 願 2 0 0 1 - 0 4 6 3 2 4
Application Number:
[ST. 10/C] : [J P 2 0 0 1 - 0 4 6 3 2 4]

出 願 人 株式会社ユポ・コーポレーション
Applicant(s):

2 0 0 3 年 7 月 9 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特 2 0 0 3 - 3 0 5 4 8 3 2

【書類名】 特許願

【整理番号】 0Y0107

【あて先】 特許庁長官 及川 耕造 殿

【国際特許分類】 B32B 27/00
G09F 3/04

【発明者】

【住所又は居所】 茨城県鹿島郡神栖町東和田 2 3 番地 株式会社ユポ・コーポレーション 鹿島工場内

【氏名】 西澤 孝利

【発明者】

【住所又は居所】 茨城県鹿島郡神栖町東和田 2 3 番地 株式会社ユポ・コーポレーション 鹿島工場内

【氏名】 椎名 真樹

【特許出願人】

【識別番号】 000122313

【氏名又は名称】 株式会社ユポ・コーポレーション

【代表者】 宇津木 充

【代理人】

【識別番号】 100103436

【弁理士】

【氏名又は名称】 武井 英夫

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 033396

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9304536

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 インモールド成形用ラベル

【特許請求の範囲】

【請求項1】 表面層（I）、中心層（II）、ヒートシール性樹脂層（III）の少なくとも3層よりなる無延伸多層フィルムであって、表面層（I）が永久帯電防止剤および無機微細粉末及び／又は有機フィラーを含有した熱可塑性樹脂組成物よりなり、かつ表面層（I）の中心線平均粗さが $0.3 \sim 3.0 \mu\text{m}$ であることを特徴とするインモールド成形用ラベル。

【請求項2】 表面層（I）のインキ密着強度が、 $1 \text{ kg} \cdot \text{cm}$ 以上であることを特徴とする請求項1に記載のインモールド成形用ラベル。

【請求項3】 多層フィルムの不透明度が、30%以下であることを特徴とする請求項1または2に記載のインモールド成形用ラベル。

【請求項4】 表面層（I）が、

成分A： ポリオレフィン系樹脂 40～94重量%、

成分B： 永久帯電防止剤 5～40重量%、

成分C： 無機微細粉末および／又は有機フィラー 1～20重量%、

を含有する樹脂組成物からなることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載のインモールド成形用ラベル。

【請求項5】 ヒートシール性樹脂層（III）が、永久帯電防止剤を含有した熱可塑性樹脂組成物よりなるものであることを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載のインモールド成形用ラベル。

【請求項6】 ヒートシール性樹脂層（III）が、

成分a： エチレン系樹脂 60～95重量%、

成分b： 永久帯電防止剤 5～40重量%、

を含有する樹脂組成物からなることを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載のインモールド成形用ラベル。

【請求項7】 永久帯電防止剤がポリエーテルエステルアミドを主成分とするものであることを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載のインモールド成形用ラベル。

【請求項 8】 中心層 (I I) が、ポリオレフィン系樹脂を含有することを特徴とする請求項 1～7 のいずれかに記載のインモールド成形用ラベル。

【請求項 9】 表面層 (I) が、中心線平均粗さが $0.5 \sim 5 \mu\text{m}$ の梨地ロールを圧着することで表面を粗面化したことを特徴とする請求項 1～8 のいずれかに記載のインモールド成形用ラベル。

【請求項 10】 ヒートシール性樹脂層 (I I I) が、その表面にエンボス加工が施されていることを特徴とする請求項 1～9 のいずれかに記載のインモールド成形用ラベル。

【請求項 11】 多層フィルムの引張弾性率が、縦横ともに $8,000 \sim 40,000 \text{ kgf/cm}^2$ の範囲であることを特徴とする請求項 1～10 のいずれかに記載のインモールド成形用ラベル。

【請求項 12】 中心層 (I I) が、プロピレン系樹脂及び／又はエチレン系樹脂を含有することを特徴とする請求項 1～11 のいずれかに記載のインモールド成形用ラベル。

【請求項 13】 成分 a のエチレン系樹脂が、結晶化度 $10 \sim 60\%$ 、数平均分子量が $10,000 \sim 40,000$ 、融点が $50 \sim 130^\circ\text{C}$ であることを特徴とする請求項 6～12 のいずれかに記載のインモールド成形用ラベル。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ラベルを予め金型内に該ラベルの印刷が施された表面側が金型壁面に接するようにセットし、金型内に溶融した熱可塑性樹脂のパリソンを導き中空成形して、或いは溶融した熱可塑性樹脂を射出成形して、或いは溶融した熱可塑性樹脂シートを真空成形もしくは圧空成形してラベル貼合容器を製造するインモールド成形に用いるラベルに関するものである。

【0002】

【従来の技術】

従来、ラベル付きの樹脂成形容器を一体成形するには、金型内に予めブランク又はラベルをインサートし、次いで射出成形、中空成形、差圧成形、発泡成形な

どにより該金型内で容器を成形して、容器に絵付けなどを行なっている（特開昭 58-69015号公報、ヨーロッパ公開特許第254923号明細書参照）。この様なインモールド成形用ラベルとしては、例えば結晶性のポリプロピレンやポリエチレン等の押出し成形やカレンダー成形により得られた無延伸透明フィルムを基材とし、該基材にエチレン・酢酸ビニル共重合体などの低融点オレフィン系樹脂の溶液をグラビアコーターなどでコーティングして乾燥することにより得られるラベルや、低融点オレフィン系樹脂フィルムを接着剤を用い該基材に積層したり、押出しラミネートにより直接積層して得られるラベルが提案されている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、このようにして得られた無延伸透明フィルムは帯電防止性が不十分であり、枚葉でのオフセット印刷がなされた場合、印刷機での給排紙性に問題があった。また、帯電防止性能を付与する目的で、移行型の帯電防止剤を練り込んだ場合、長期の帯電防止効果が不十分であるばかりでなく、オフセットインキの密着が悪いといった問題があった。また、特許第2790197号公報に記載されている透明なインモールドラベルは、容器への接着性は優れているものの、引張り弾性率が2,000～6,000 kg/cm²と低いことから、同様に枚葉でのオフセット印刷の給排紙性に問題があった。

【0004】

したがってこれまでは、透明インモールド成形用ラベルを得るためには、無延伸フィルムを製造する工程と、その裏面にグラビアインキなどにより裏印刷する工程と、その印刷インキの上にヒートシール剤を塗工、貼合あるいは押出ラミネートをする工程の少なくとも3工程が必要であり、その結果ラベルの製造に多くの日数を要し、また価格も高いといった問題があった。

本発明は、帯電防止性に優れかつインキの密着が優れることから、枚葉によるオフセット印刷における表印刷が可能であり、その結果、短納期で小ロットのラベルの注文にも対応可能であり、印刷後のラベルの断裁、打ち抜き加工、金型へのインサート性にも優れ、ブリストアの発生がなく容器へ強固に融着する、透明

なインモールド成形用ラベルの提供を目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、これらの問題を解決するために鋭意検討をかさねた結果、表面層を形成する熱可塑性樹脂組成物に永久帯電防止剤と無機微細粉末及び／又は有機フィラーを含有させ、かつ表面粗さを特定の粗さにすることで、オフセット印刷での給排紙性を良好とし、かつオフセットインキの密着も良好であることを見い出して、本発明を完成するに至った。

すなわち本発明は、表面層（I）、中心層（II）、ヒートシール性樹脂層（III）の少なくとも3層よりなる無延伸多層フィルムであって、表面層（I）が永久帯電防止剤および無機微細粉末および／又は有機フィラーを含有した熱可塑性樹脂組成物よりなり、かつ表面層（I）の中心線平均粗さが0.3～3.0 μm であることを特徴とする透明なインモールド成形用ラベルを提供するものである。

【0006】

【発明の実施の形態】

インモールド成形用ラベルの構造：

本発明のインモールド成形用ラベルについてさらに詳細に説明する。

図1は、中空成形用ラベルの概略断面図を示したものであり、図中、1はインモールド成形用ラベル、2は印刷、3は表面層（I）、4は中心層（II）、5はヒートシール性樹脂層（III）である。ヒートシール性樹脂層（III）は表面にエンボス加工を施し、それによりインモールド成形時のプリスターの発生を防ぐことができる。

【0007】

表面層（I）

1) 熱可塑性樹脂

本発明の表面層（I）の素材としては、プロピレン系樹脂、高密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、直鎖線状低密度ポリエチレン、エチレン・酢酸ビニル共重合体、エチレン・アクリル酸共重合体、エチレン・アクリル酸アルキルエス

テル共重合体、エチレン・メタクリル酸アルキルエステル共重合体（アルキル基の炭素数は1～8）、エチレン・メタクリル酸共重合体の金属塩、ポリ4-メチルー1-ペンテン、エチレン-環状オレフィン共重合体等のポリオレフィン系樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、ナイロン-6、ナイロン-6, 6、ナイロン-6, 10、ナイロン-6, 12等のポリアミド系樹脂、ABS樹脂、アイオノマー樹脂等のフィルムを挙げることができるが、好ましくはプロピレン系樹脂、高密度ポリエチレン、ポリエチレンテレフタレート樹脂等の融点が130～280℃の範囲の熱可塑性樹脂であり、これらの樹脂は2種以上混合して用いることもできる。

これらの中でも、ポリオレフィン系樹脂を用いることが好ましい。更にポリオレフィン系樹脂の中でも、コスト面、耐水性、耐薬品性の面からプロピレン系樹脂、高密度ポリエチレンを用いることがより好ましい。

【0008】

かかるプロピレン系樹脂としては、アイソタクティックないしはシンジオタクティックおよび種々の程度の立体規則性を示すプロピレン単独重合体（ポリプロピレン）、プロピレンを主成分とし、これと、エチレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、4-メチルー1-ペンテン等の α -オレフィンとの共重合体を好ましく使用することができる。これらの共重合体は、2元系でも3元系でも4元系でもよく、またランダム共重合体でもブロック共重合体であってもよい。また、その含有量は40～94重量%、好ましくは30～90重量%であることが好ましい。

【0009】

2) 無機微細粉末、有機フィラー

表面層（I）に含まれる無機微細粉末及び／又は有機フィラーの種類は特に限定されない。

無機微細粉末としては、重質炭酸カルシウム、軽質炭酸カルシウム、焼成クレー、タルク、硫酸バリウム、珪藻土、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化チタン、酸化珪素などが挙げられ、またこれらは脂肪酸等で表面処理されていても良い。なかでも、重質炭酸カルシウム、焼成クレー、タルクが、安価で成形性が良く

好ましい。

【0010】

有機フィラーとしては、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリエチレンナフタレート、ポリスチレン、メラミン樹脂、ポリエチレンサルファイト、ポリイミド、ポリエチルエーテルケトン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンサルファイト、ポリ-4-メチル-1-ペンテン、ポリメチルメタクリレート、環状オレフィンの単独重合体や環状オレフィンとエチレンとの共重合体等で、融点が120～300℃、乃至はガラス転移温度が120～280℃を有するものなどが挙げられる。上記の無機微細粉末及び／又は有機フィラーの中から1種を選択してこれを単独で使用してもよいし、2種以上を組み合わせ使用してもよい。またその含有量は1～20重量%、好ましくは2～15重量%であることが好ましい。

【0011】

3) 永久帯電防止剤

表面層(I)を構成する永久帯電防止剤としては、特開昭58-118838号公報、特開平1-163234号公報等に記載のポリエーテルエステルアミドを挙げることができる。ポリエーテルエステルアミドの構成成分である(i)炭素原子数6以上のアミノカルボン酸あるいはラクタム、または炭素原子数6以上のジアミンとジカルボン酸の塩としては ω -アミノカプロン酸、 ω -アミノエナント酸、 ω -アミノカプリル酸、 ω -アミノペルゴン酸、 ω -アミノカプリン酸および11-アミノウンデカン酸、12-アミノデドカン酸などのアミノカルボン酸あるいはカプロラクタム、エナントラクタム、カプリルラクタムおよびラウロラクタムなどのラクタムおよびヘキサメチレンジアミン-アジピン酸塩、ヘキサメチレンジアミン-セバシン酸塩およびヘキサメチレンジアミン-イソフタル酸塩などのジアミン-ジカルボン酸の塩などが用いられ、特にカプロラクタム、12-アミノドデカン酸、ヘキサメチレンジアミン-アジピン酸塩が好ましく用いられる。

【0012】

ポリエーテルエステルアミドの構成成分である(ii)ポリ(アルキレンオキ

シド) グリコールとしては、ポリエチレングリコール、ポリ(1, 2-プロピレンオキシド) グリコール、ポリ(1, 3-プロピレンオキシド) グリコール、ポリ(テトラメチレンオキシド) グリコール、ポリ(ヘキサメチレンオキシド) グリコール、エチレンオキシドとポリピレンオキシドのブロックまたはランダム共重合体およびエチレンオキシドとテトラヒドロフランのブロックまたはランダム共重合体などが用いられる。これらの中でも、帯電防止性が優れる点で、特にポリエチレングリコールが好ましく用いられる。ポリ(アルキレンオキシド) グリコールの数平均分子量は200~6,000、特に250~4,000の範囲で用いられ、数平均分子量が200未満では得られるポリエーテルエステルアミドの機械的性質が劣り、数平均分子量が6,000を超えると帯電防止性が不足するため好ましくない。

【0013】

ポリエーテルエステルアミドの構成成分である(iii)炭素原子数4~20のジカルボン酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、ナフタレン-2, 6-ジカルボン酸、ナフタレン-2, 7-ジカルボン酸、ジフェニル-4, 4'-ジカルボン酸、ジフェノキシエタンジカルボン酸および3-スルホイソフタル酸ナトリウムのごとき芳香族ジカルボン酸、1, 4-シクロヘキサンジカルボン酸、1, 2-シクロヘキサンジカルボン酸およびジシクロヘキシル-4, 4'-ジカルボン酸のごとき脂環族ジカルボン酸およびコハク酸、シュウ酸、アジピン酸、セバシン酸およびドデカンジ酸(デカンジカルボン酸)のごとき脂肪族ジカルボン酸などが挙げられ、特にテレフタル酸、イソフタル酸、1, 4-シクロヘキサンジカルボン酸、アジピン酸、セバシン酸およびドデカンジ酸が重合性、色調および物性の点から好ましく用いられる。

【0014】

(ii) ポリ(アルキレンオキシド) グリコールと(iii) ジカルボン酸は反応上は1:1のモル比で反応するが、使用するジカルボン酸の種類により通常仕込比を変えて供給される。

ポリエーテルエステルの構成成分である(ii) ポリ(アルキレンオキシド) グリコールと(iii) ジカルボン酸はポリエーテルエステルアミドの構成単位

で、90～10重量%の範囲で用いられ、90重量%を超える場合はポリエーテルエステルアミドの機械的性質が劣り、10重量%未満では得られる樹脂の帯電防止性が劣り好ましくない。

【0015】

ポリエーテルエステルアミドの重合方法に関しては特に限定されず、例えば、
(イ) (i) アミノカルボン酸またはラクタムと (iii) ジカルボン酸を反応させて両末端がカルボン酸基のポリアミドプレポリマをつくり、これに (ii) ポリ (アルキレンオキシド) グリコールを真空下に反応させる方法、
(ロ) 前記 (i)、(ii)、(iii) の各化合物を反応槽に仕込み、水の存在下または非存在下に高温で加圧反応させることにより、カルボン酸末端のポリアミドプレポリマを生成させ、その後常圧または減圧下で重合を進める方法、
(ハ) 前記 (i)、(ii)、(iii) の化合物を同時に反応槽に仕込み熔融混合したのち高真空下で一挙に重合を進める方法
などを利用することができる。

【0016】

また、重合溶媒についても制限はなく、例えば三酸化アンチモンなどのアンチモン系触媒、モノブチルスズオキシドなどのスズ系触媒、テトラブチルチタネートなどのチタン系触媒、テトラブチルジルコネートなどのジルコネート系触媒などを1種または2種以上使用することもできる。

表面層 (I) 成分中のポリエーテルエステルアミド (b) の含有量は、通常5～40重量%、好ましくは6～30重量%である。上記成分 (b) の量が上記範囲未満であると帯電防止性が不十分であり、上記範囲を超過するとラベル表面の強度が不足する。

【0017】

上記ポリエーテルエステルアミドの帯電防止性をより確実に発現させる目的で、ポリエーテルエステルアミドには塩素酸ナトリウム、過塩素酸ナトリウム、水酸化カルシウム、水酸化マグネシウム、水酸化ジルコニウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、リン酸ナトリウム等の金属塩や、ZnやNaを対イオンとするアイオノマー (エチレンまたはプロピレンと α 、 β -不飽和カルボン酸誘導体

との共重合体に原子価が1～3の金属イオンを付加せしめたイオン性重合体)を、好ましくは0.01～5重量%の範囲で添加することができる。さらに、ポリエーテルエステルアミドと熱可塑性樹脂との相溶性を高め機械的強度を向上させる目的で、マレイン酸変性ポリプロピレン、マレイン酸変性ポリエチレン等の変性ポリオレフィンを好ましくは0.5～5重量%の範囲で添加しても良い。

【0018】

中心層 (I I)

中心層を構成する素材としては、表面層 (I) に用いられる熱可塑性樹脂を用いることができる。これらの中でも、ポリオレフィン系樹脂を含有することが好ましい。更にポリオレフィン系樹脂の中でも、コスト面、耐水性、耐薬品性の面からプロピレン系樹脂及び／又はエチレン系樹脂 (高密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、直鎖線状低密度ポリエチレン等) を含有することがより好ましい。またプロピレン系樹脂の場合は、剛度が高い点でプロピレン単独重合体の立体規則性が高いアイソタクティックプロピレンが好ましい。

【0019】

これら熱可塑性樹脂には、剛度や透明性を向上させる目的で、核剤を添加することがより好ましい。これら核剤としては1, 3, 2, 4-ジベンジリデンソルビトール、1, 3, 2, 4-ジ- (p-メチルベンジリデン) ソルビトール、1, 3-0-メチルベンジリデン2, 4-p-メチルベンジリデン, p-t-ブチル安息香酸アルミニウム、リン酸ビス (4-t-ブチルフェニル) ナトリウム、リン酸2, 2'-エチリデン-ビス (4, 6-ジ-t-ブチルフェニル) ナトリウム、酸化アルミニウム、カオリンクレー、タルクなどの、ベンジリデンソルビトール系、カルボン酸系、無機リン酸塩系、無機物等いずれも好適に使用でき、それらの添加量は好ましくは0.001～1重量%の範囲である。

【0020】

ヒートシール性樹脂層 (I I I)

1) エチレン系樹脂

ヒートシール性樹脂層 (I I I) を構成するエチレン系樹脂としては、密度が0.940～0.970 g/cm³ の高密度ポリエチレン、密度が0.900～

0.935 g/cm³ の低密度ないし中密度の高圧法ポリエチレン、密度が0.880～0.940 g/cm³ の直鎖線状ポリエチレン、エチレン・酢酸ビニル共重合体、エチレン・アクリル酸共重合体、エチレン・アクリル酸アルキルエステル共重合体、エチレン・メタクリル酸アルキルエステル共重合体（アルキル基の炭素数は1～8）、エチレン・メタクリル酸共重合体の金属塩（Zn、Al、Li、K、Naなど）等の融点が50～130℃のポリエチレン系樹脂が好ましい。

【0021】

より好ましくは、結晶化度（X線法）が10～60%、数平均分子量が10,000～40,000の高圧法ポリエチレン、又は直鎖線状ポリエチレンがよい。中でも容器への接着性の面からエチレン40～98重量%と、炭素数が3～30の α -オレフィン60～2重量%とを、メタロセン触媒、特にメタロセン・アルモキサン触媒、または、例えば、国際公開WO92/01723号パンフレット等に記載されているようなメタロセン化合物と、メタロセン化合物と反応して安定なアニオンを形成する化合物とからなる触媒を使用して、共重合体させることにより得られる直鎖線状ポリエチレンが最適である。これらポリオレフィン系樹脂は、単独でも、あるいは二種以上の混合物であってもよい。またその含有量は60～95重量%、好ましくは70～90重量%であることが好ましい。

【0022】

2) 永久帯電防止剤

ヒートシール性樹脂層（III）を構成する永久帯電防止剤としては、表面層（I）に含まれるポリエーテルエステルアミドと同じ成分である樹脂組成物を挙げることができる。またその含有量は5～40重量%、好ましくは10～30重量%であることが好ましい。

【0023】

任意成分

本発明の表面層（I）、中心層（II）、ヒートシール性樹脂層（III）には、目的とする帯電防止性やインキ密着性、ヒートシール性等を阻害しない範囲で公知の他の樹脂用添加剤を任意に添加することができる。該添加剤としては、

脂肪酸アミドなどのスリップ剤、アンチブロッキング剤、染料、可塑剤、離型剤、酸化防止剤、難燃剤、紫外線吸収剤等を挙げることができる。

【0024】

肉厚

本発明の表面層（I）の肉厚は $1 \sim 30 \mu\text{m}$ 、好ましくは $2 \sim 20 \mu\text{m}$ の範囲である。 $1 \mu\text{m}$ 未満では帯電防止性やインキ密着性に劣り、 $30 \mu\text{m}$ を超えると不透明度が低下する。中心層（II）の肉厚は $30 \sim 200 \mu\text{m}$ 、好ましくは $40 \sim 100 \mu\text{m}$ の範囲である。 $30 \mu\text{m}$ 未満では剛度が低く枚葉でのオフセット印刷性が劣り、 $200 \mu\text{m}$ を超えるとラベルが貼着された端部のボトルの強度が低下する。ヒートシール性樹脂層（III）の肉厚は $1 \sim 30 \mu\text{m}$ 、好ましくは $2 \sim 20 \mu\text{m}$ の範囲である。 $1 \mu\text{m}$ 未満では容器との融着強度が低くまたブリスターが発生しやすくなり、 $30 \mu\text{m}$ を超えるとラベルがカールして枚葉でのオフセット印刷が困難となったり、ラベルを金型へ固定することが困難となるので好ましくない。

【0025】

中心線平均粗さ

本発明の表面層（I）の中心線平均粗さは $0.3 \sim 3 \mu\text{m}$ の範囲となるよう粗面化されていることが好ましい。この粗面化は、樹脂組成物をダイスより押出しキャストロールで冷却する際に、キャストロール表面に施された梨地模様を転写することによって行ってもよいし、キャスト冷却後、押し出しシートを再加熱しながら中心線平均粗さが $0.5 \sim 5 \mu\text{m}$ の梨地ロールを圧着することで粗面化してもよい。

表面層（I）の中心線平均粗さは $0.3 \sim 3 \mu\text{m}$ の範囲となるよう粗面化することにより、UVインキによる印刷後のインキ密着性が向上できる。中心線平均粗さは $0.3 \mu\text{m}$ 未満ではインキ密着性に劣る。 $3 \mu\text{m}$ を超えては表面のザラツキが見られ見栄えが悪い。

【0026】

エンボス加工

前述したようにラベルのヒートシール性樹脂層（III）には、中空成形時の

ブリスターの発生を防止するために、特開平2-84319号公報、特開平3-260689号公報に記載するようにエンボス加工を施すことができる。そのエンボス模様は、好ましくは2.54cm当り5~300線のエンボス加工であって、グラビア型、ピラミッド型、斜線型およびそれらの逆型等、いずれのパターンを転写してもよいが、逆グラビア型のパターンが彫刻されたロールにより、ヒートシール性樹脂層（III）側にはグラビア型のパターンが転写されるよう加工することがより好ましい。また加工は前述のようにキャスト冷却時でもよいし、冷却後再加熱して転写してもよい。

【0027】

印刷

これらのインモールド成形用ラベルは、コロナ放電処理や、フレイムプラズマ処理等の表面加工を施すことにより、表面層（I）の印刷性を改善しておくことが好ましい。

印刷は、グラビア印刷、オフセット印刷（油性、UV）、フレキソ印刷、レタープレス（UV）、スクリーン印刷、インクジェット印刷、電子写真印刷等を施して、バーコード、製造元、販売会社名、キャラクター、商品名、使用方法などを記入する。

印刷されたラベル（1）は打抜加工により必要な形状寸法のラベルに分離される。このインモールド成形用ラベルは、通常はカップ状容器の側面を取巻くブランクとして、中空成形では瓶状容器の表側及び／又は裏側に貼着されるラベルとして製造される。

【0028】

インキ密着性

UVインキである「ベストキュアー161S」（商品名、（株）T&K TOKA製）を用い、25℃、相対湿度40%の環境下で印刷後、UV照射直後の印刷が施された面に、「セロテープ」（商品名、ニチバン（株）製）を貼着し、インターナルボンドテスター（熊谷理機工業（株）製）にてセロテープ剥離した際のインキ密着強度を（kg・cm）測定した。インキ密着強度は、1kg・cm以上、好ましくは2kg・cm以上である。1kg・cm未満では、剥がす時の

抵抗はあるが、インキのほとんどが剥がれ、実用上問題がある。

インキ密着性を向上させるためには、表面層（I）を粗面化する事に加えて、表面層（I）にエチレン・酢酸ビニル共重合体、エチレン・アクリル酸共重合体、エチレン・アクリル酸アルキルエステル共重合体、エチレン・メタクリル酸アルキルエステル共重合体（アルキル基の炭素数は1～8）、エチレン・メタクリル酸共重合体の金属塩等の極性基を有する熱可塑性樹脂を含有させるのが好ましい。

【0029】

インモールド成形

このインモールド成形用ラベルは、該ラベルを差圧成形金型の下雌金型の内面にラベルの印刷面が接するように設置した後、吸引により金型内壁に固定され、次いで容器成形材料樹脂シートの溶融物が下雌金型の上方に導かれ、常法により差圧成形され、ラベルが容器外壁に一体に融着されたラベル貼合容器が成形される。差圧成形は、真空成形、圧空成形のいずれも採用できるが、一般には両者を併用し、かつプラグアシストを利用した差圧成形が好ましい。

またこのラベルは、溶融樹脂パリソンを圧空により金型内壁に圧着する中空成形用のインモールドラベルとして特に好適に使用できる。

このようにして製造されたラベル貼合容器は、ラベル（1）が金型内で固定された後に、ラベルと樹脂容器が一体に成形されるので、ラベル（1）の変形もなく、容器本体とラベル（1）の密着強度が強固であり、ブリスターもなく、ラベルにより加飾された外観が良好な容器となる。

【0030】

【実施例】

以下に実施例及び比較例により本発明を更に具体的に説明する。

〔I〕物性の測定方法と評価方法

実施例及び比較例における物性の測定と評価は、以下に示す方法によって実施した。

（1）物性の測定：

（a）MFR ： J I S - K - 7 2 1 0 に準拠

- (b) 密度 : J I S - K - 7 1 1 2 に準拠
(c) 不透明度 : J I S - P - 8 1 3 8 に準拠
(d) 表面固有抵抗 : J I S - K - 6 9 1 1 に準拠し、23℃、相対湿度 50 % の雰囲気下で測定した。
(e) 中心線平均粗さ : J I S - 0 6 0 1 に準拠し、R a を (株) 小坂研究所 製、サーフコーダー S E - 3 0 にて測定した。

【0031】

(2) オフセット印刷:

(f) 給排紙性:

三菱重工 (株) 製ダイヤーII型印刷機を使用し、インキとしてUVインキである「ベストキュアー161S」(商品名、(株) T & K T O K A 製) を用い、25℃、相対湿度40%の環境下、菊半版(636mm×470mm)の紙サイズで、7000枚/時の速度で1000枚連続印刷した。その際にシート給紙装置でのトラブル(2枚差しや、紙ずれ)により機械が停止した回数を、以下の基準により判断した。

◎: 1回も機械が停止しない

○: 1～3回機械が停止する

×: 4回以上機械が停止する

【0032】

(g) インキ密着性:

UV照射直後の印刷が施された面に、「セロテープ」(商品名、ニチバン(株)製)を貼着し、インターナルボンドテスター(熊谷理機工業(株)製)にてセロテープ剥離した際のインキ密着強度を(kg・cm)測定した。得られた強度と実使用上の良否判断は、以下の基準にて評価した。

2kg・cm以上

◎: インキが剥がれない状態

1～2kg・cm未満

○: インキが僅かに剥がれるが、実用上問題がないレベル

0.5～1kg・cm未満

△: 剥がす時の抵抗はあるが、インキのほとんどが剥がれ、実用上問題がある。

0.5 kg・cm未満 ×： インキが全量剥がされ、剥がす抵抗も殆ど無い状態で、実用上使用できない。

【0033】

(3) インモールド成形：

(株) プラコー製の中空成形機 (V-50 型) を使用し、ぺんてる (株) 製の自動ラベル供給装置を用いて、打ち抜き加工したインモールド成形用ラベル (横 70 mm、縦 90 mm) を、ブロー成形用割型 (容量 800 ml) の一方に真空を利用して印刷面側が金型と接するように固定した後、高密度ポリエチレン (日本ポリケム (株) 製、「ノバテック PE、HB330、融点 133℃) のパリソンを 200℃で熔融押出し、次いで割型を型締めした後、4.5 kg/cm² の圧空をパリソン内に供給し、パリソンを膨張させて型に密着させて容器状とすると共にインモールド用ラベルと融着させ、次いで該型を冷却した後、型開きをしてラベルが貼着した中空容器を取り出した。

【0034】

(h) ブリスターの発生：

連続して容器 10 個をインモールド成形を行い、1 個もブリスターが発生しないものを○、1 個以上発生するものを×とした。

(i) ラベルの容器への融着強度：

中空成形により容器に貼着したラベルを 15 mm 幅に切り取り、ラベルと容器との間の接着強度を、島津製作所製の引張試験機「オートグラフ、AGS-D 形」を用い、300 mm/分の引張速度で、T 字剥離することにより求めた。

ラベル使用上の判断基準は次の通りである。

400 (g/15 mm) 以上 : 実用上全く問題がない
200 ~ 400 (g/15 mm) : やや接着性が弱い、実用上問題がない
200 (g/15 mm) 以下 : 実用上問題である

【0035】

〔II〕 実験例

〔ポリエーテルエステルアミドの製造〕

12-アミノドデカン酸 55 部、数平均分子量が 1,000 のポリエチレンゲ

リコール 40 部およびアジピン酸 15 部を、「イルガノックス 1098」（酸化防止剤）0.2 部および三酸化アンチモン触媒 0.1 部と共にヘリカルリボン攪拌翼を備えた反応容器に仕込み、窒素置換して 260℃で 60 分間加熱攪拌して透明な均質溶液とした後、260℃、0.5 mmHg 以下の条件で 4 時間重合し、粘ちようで透明なポリマーを得た。ポリマーを冷却ベルト上にガット状に吐出し、ペレタイズすることによって、ペレット状のポリエーテルエステルアミド（b1）を調製した。

【0036】

ε-カプロラクタム 50 部、数平均分子量が 1,000 のポリエチレングリコール 40 部およびドデカンジ酸 10 部を、「イルガノックス 1098」0.2 部および三酸化アンチモン 0.02 部と共に b1 の製造に用いた反応容器に仕込み、窒素置換して 260℃で 60 分間加熱攪拌して透明な均質溶液とした後、500 mmHg に減圧して反応容器気相部の水分を除去し、テトラブチルジルコネート 0.08 部添加した。次いで 260℃、0.5 mmHg 以下の条件で 3 時間重合し、粘稠で透明なポリマを得た。以降（b1）と同一方法でポリエーテルエステルアミド（b2）を調製した。

【0037】

〔ラベルの製造例〕

（実施例 1）

（1）プロピレン単独重合体 70 重量％（日本ポリケム（株）製、「ノバテック PP、MA-4」商品名、融点 164℃）、平均粒径 1.5 μm の炭酸カルシウム粉末 5 重量％、前記製造例にて得られたポリエーテルエステルアミド（b1）19 重量％、マレイン酸変性ポリプロピレン 1 重量％（三菱化学（株）製、「MODIC、P-300M」商品名）、およびエチレン・酢酸ビニル共重合体 5 重量％（日本ポリケム（株）製、「ノバテック EVA、LV440」）よりなる樹脂組成物（A）を、230℃に設定した押出機を用いて熔融混練した。

【0038】

（2）プロピレン単独重合体（日本ポリケム（株）製、「ノバテック PP、MA-4」商品名、融点 164℃）（B）を、240℃に設定した押出機を用いて

熔融混練した。

(3) メタロセン触媒を用いてエチレンと1-ヘキセンを共重合させて得たMFRが18 g/10分、密度が0.898 g/cm³、融点90℃であるエチレン・1-ヘキセン共重合体(1-ヘキセン含量22重量%、結晶化度30、数平均分子量23,000)70重量%と、MFRが4 g/10分、密度が0.92 g/cm³、融点110℃の高圧法低密度ポリエチレン30重量%よりなる樹脂組成物(C)を、200℃に設定した押出機を用いて熔融混練した。

【0039】

(4) 上記(1)～(3)にて熔融混練された樹脂組成物を3層のマルチマニホールドを有するダイに導き、(A)/(B)/(C)となるようにダイ内で積層し、50℃に設定された中心線平均粗さが1 μmのキャストロールに樹脂組成物(A)が接するようにシート状に押し出し、60℃の温度となるまでシートを冷却した。

(5) 引き続きシートを金属エンボスロール(1インチあたり250線、逆グラビア型)とゴムロールの間に通し、ヒートシール性樹脂層(III)側に0.1 mm間隔のパターンをエンボス加工したのち、耳部をスリットし、表面層(I)側に、放電電極として4山の電極を用い、高周波電源として春日電機(株)製AGI-201型の放電処理装置を用いて60 W・分/m²の放電処理を行い得られたシートを巻き取った。このシートを636 mm×470 mmに断裁し、印刷性およびインモールド成形の評価を行った。これら結果を表1に示す。

【0040】

(実施例2～5、および比較例1)

各層の配合を表1に記載のものに変更した以外は、実施例1と同様の方法にてインモールドラベルを得た。このものの評価結果を表1に示す。

(比較例2～6)

キャストロールの表面を鏡面光沢(中心線平均粗さ0.05 μm)のロールを使用した以外は表1に記載の配合にてインモールドラベルを得た。また、比較例6においては、ヒートシール性樹脂層(III)にはエンボス加工を施さなかった。

【0041】

【表1】

表1

配合	表面層(I)	熱可塑性樹脂	実施例1										比較例6									
			70	75	—	70	70	70	70	100	100	70	70	70	93	93	93	93	93	93	93	93
中心層(II)	熱可塑性樹脂	高密度ポリエチレン「HY540」	—	—	75	—	70	70	70	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		マレイン酸変性ポリエチレン	1	1	—	—	1	1	1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		マレイン酸変性ポリエチレン	—	—	1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		エチレン・酢酸ビニル共重合体	5	—	—	—	5	5	5	—	—	5	5	5	—	—	—	—	—	—	—	—
		永久帯電防止剤	19	—	19	19	19	19	19	—	—	19	19	19	—	—	—	—	—	—	—	—
	無機微細粉末	シリカ	—	19	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		シリカ・アルミナ複合体	5	5	5	5	5	5	5	—	—	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
		炭酸カルシウム	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		「エレクトロスタティック」TS-6」	100	100	—	—	100	—	—	100	100	—	—	—	100	100	100	100	100	100	100	100
		高密度ポリエチレン「HY540」	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
評価	中心層平均値	高密度ポリエチレン「HY540」	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
		マレイン酸変性ポリエチレン	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
		マレイン酸変性ポリエチレン	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		エチレン・酢酸ビニル共重合体	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		永久帯電防止剤	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	エンボス加工	「エレクトロスタティック」TS-5」	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		表面層(I)側	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り
		不透明度	0.8	0.9	1.1	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.2	0.2	0.2	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15
		引張強度	15000	15000	16000	15000	15000	15000	15000	15000	15000	15000	15000	15000	15000	15000	15000	15000	15000	15000	15000	15000
		表面層(II)側	2×10 ¹²	3×10 ¹²	8×10 ¹¹	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹
評価	表面層有抵抗	ヒートシール性樹脂層(III)側	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹
		UVアブセプト印刷耐熱性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
		UVアブセプト印刷耐熱性	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
		プラスチックの発生	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
		塗膜との密着強度	450	450	440	420	420	420	420	480	480	450	450	450	450	450	450	450	450	450	450	450
	表面層有抵抗	表面層(III)側	2×10 ¹²	3×10 ¹²	8×10 ¹¹	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	2×10 ¹²	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹	4×10 ¹¹
		ヒートシール性樹脂層(III)側	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	1×10 ¹⁵	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹	7×10 ¹¹
		UVアブセプト印刷耐熱性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
		UVアブセプト印刷耐熱性	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
		プラスチックの発生	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

高密度ポリエチレン「HY540」 日本ポリケム(株)製、商品名
マレイン酸変性ポリエチレン 三菱化学(株)製、「MODIC、L-400H」商品名
「エレクトロスタティック」TS-5」 花王(株)製、商品名
ポリプロピレン「FY-8C」 日本ポリケム(株)製、商品名、プロレン樹脂重合体
ポリプロピレン「FL-25」 日本ポリケム(株)製、商品名、プロレン樹脂重合体
金剛砂 リン酸ナトリウム

【 0 0 4 2 】

【発明の効果】

本発明により、枚葉によるオフセット印刷における表印刷が可能であり、その結果、短納期で小ロットのラベルの注文にも対応可能であり、印刷後のラベルの断裁、打ち抜き加工、金型へのインサート性にも優れ、ブリスターの発生がなく容器へ強固に融着する、透明なインモールド成形用ラベルを提供することができた。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

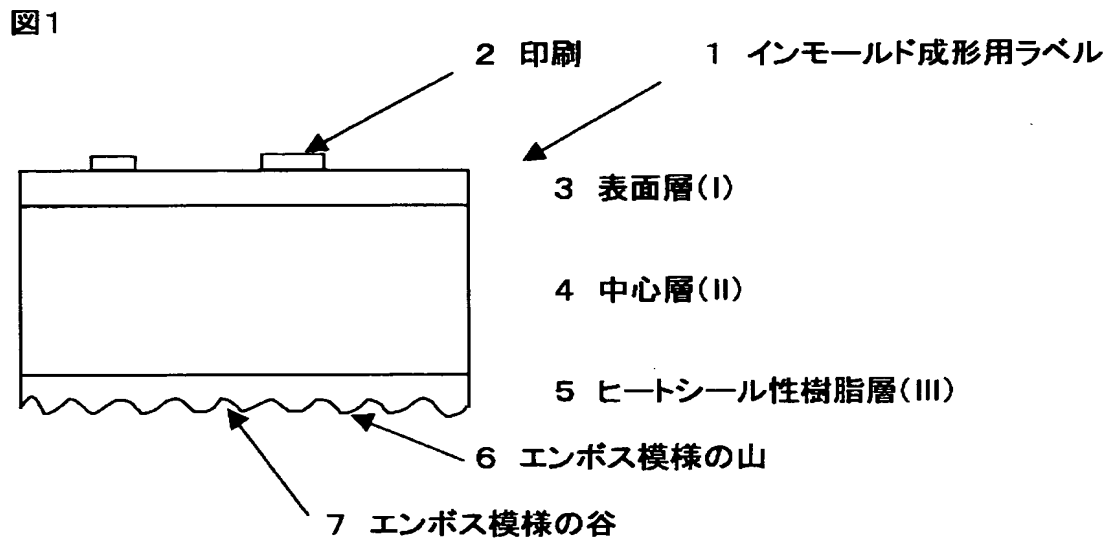
本発明の一態様のインモールド成形用ラベルの断面図である。

【符号の説明】

- 1 インモールド成形用ラベル
- 2 印刷
- 3 表面層（I）
- 4 中心層（I I）
- 5 ヒートシール性樹脂層（I I I）
- 6 エンボス模様の山
- 7 エンボス模様の谷

【書類名】 図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 帯電防止性に優れかつインキの密着が優れることから、枚葉によるオフセット印刷における表印刷が可能であり、その結果、短納期で小ロットのラベルの注文にも対応可能であり、印刷後のラベルの断裁、打ち抜き加工、金型へのインサート性にも優れ、ブリスターの発生がなく容器へ強固に融着する、透明なインモールド成形用ラベルを提供する。

【解決手段】 表面層（I）、中心層（I I）、ヒートシール性樹脂層（I I I）の少なくとも3層よりなる無延伸多層フィルムであって、表面層（I）が永久帯電防止剤および無機微細粉末及び／又は有機フィラーを含有した熱可塑性樹脂組成物よりなり、かつ表面層（I）の中心線平均粗さが $0.3 \sim 3.0 \mu\text{m}$ であることを特徴とするインモールド成形用ラベル。

【選択図】 図1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 1 - 0 4 6 3 2 4
受付番号	5 0 1 0 0 2 4 7 0 2 6
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0 0 9 5
作成日	平成 1 3 年 3 月 1 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】 平成13年 2月22日

次頁無

特願 2 0 0 1 - 0 4 6 3 2 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 1 2 2 3 1 3]

1. 変更年月日

2 0 0 1 年 1 月 9 日

[変更理由]

名称変更

住 所

東京都千代田区神田駿河台 4 丁目 3 番地

氏 名

株式会社ユポ・コーポレーション